

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/002934

International filing date: 23 February 2005 (23.02.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-054148
Filing date: 27 February 2004 (27.02.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 14 July 2005 (14.07.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

23.06.2005

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 4 年 2 月 2 7 日

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 0 5 4 1 4 8

パリ条約による外国への出願
に用いる優先権の主張の基礎
となる出願の国コードと出願
番号
The country code and number
of your priority application,
to be used for filing abroad
under the Paris Convention, is

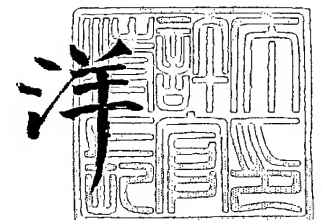
J P 2 0 0 4 - 0 5 4 1 4 8

出 願 人
Applicant(s): 独立行政法人科学技術振興機構

2 0 0 5 年 5 月 2 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



出証番号 出証特 2 0 0 5 - 3 0 3 9 3 9 8

【書類名】 特許願
【整理番号】 Y2003-P399
【提出日】 平成16年 2月27日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 H01J 49/10
H01J 49/04
G01N 27/62
G01N 30/72

【発明者】
【住所又は居所】 大阪府箕面市小野原東 4 - 2 4 - 1 ジュネスシャトー (1) 2
0 3 号
【氏名】 小江 誠司

【発明者】
【住所又は居所】 大阪府豊中市利倉西 2 - 9 - 7 - 1 0 1
【氏名】 福住 俊一

【発明者】
【住所又は居所】 愛知県西加茂郡三好町ひばりヶ丘 2 - 2 - 6
【氏名】 渡辺 芳人

【特許出願人】
【識別番号】 503360115
【氏名又は名称】 独立行政法人科学技術振興機構

【代理人】
【識別番号】 100080034
【弁理士】
【氏名又は名称】 原 謙三
【電話番号】 06-6351-4384

【手数料の表示】
【予納台帳番号】 003229
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1
【包括委任状番号】 0316432

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

吸収スペクトル・発光スペクトル・散乱スペクトルの中の少なくとも 1 つを分析する吸収・発光・散乱スペクトル分析計と、

質量スペクトルを分析する質量スペクトル分析計とを備えた分析装置であって、

上記吸収・発光・散乱スペクトル分析計と上記質量スペクトル分析計とは、同一の被験試料を分析対象としており、

上記質量スペクトル分析計内には、イオン気化された被験試料イオンのイオン量を制御するイオン導入量制御手段が備えられていることを特徴とする分析装置。

【請求項 2】

上記イオン導入量制御手段が、上記質量スペクトル分析計に設けられたイオン化室内に備えられていることを特徴とする請求項 1 に記載の分析装置。

【請求項 3】

上記イオン導入量制御手段は、位置調整ノブによって位置調整できることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の分析装置。

【請求項 4】

上記イオン導入量制御手段は、非導電性材料であることを特徴とする請求項 1 から 3 の何れか 1 項に記載の分析装置。

【請求項 5】

上記イオン導入量制御手段は、網目構造であることを特徴とする請求項 1 から 4 の何れか 1 項に記載の分析装置。

【請求項 6】

上記網目構造を構成する貫通穴の径は、 $1\ \mu\text{m}$ ～ $5\ \text{mm}$ の範囲であることを特徴とする請求項 5 に記載の分析装置。

【請求項 7】

上記吸収・発光・散乱スペクトル分析計は、赤外吸収スペクトル、可視・紫外吸収スペクトル、蛍光スペクトル、ラマン散乱スペクトルの中の少なくとも 1 つを分析するものであることを特徴とする請求項 1 に記載の分析装置。

【請求項 8】

上記被験試料は、温度制御されることを特徴とする請求項 1 から 8 の何れか 1 項に記載の分析装置。

【請求項 9】

上記被験試料は、反応溶液であり、反応開始から数秒で反応が終結するものであることを特徴とする請求項 1 から 9 の何れか 1 項に記載の分析装置。

【請求項 10】

被験試料の吸収スペクトル、発光スペクトル、散乱スペクトルを分析する吸収・発光・散乱スペクトル分析工程と、

上記被験試料と同一の被験試料をイオン気化して得られる被験試料イオンの量を制御して質量スペクトルを分析する質量スペクトル分析工程とからなる分析方法であって、

上記吸収・発光・散乱スペクトル分析工程と上記質量スペクトル分析工程とが略同時に実時間で行われることを特徴とする分析方法。

【請求項 11】

上記質量スペクトル分析工程におけるイオン化法が、エレクトロスプレーイオン化法を用いて行われることを特徴とする請求項 10 に記載の分析方法。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 質量スペクトルと略同時に吸収・発光・散乱スペクトルを分析する分析装置および分析方法

【技術分野】**【0001】**

本発明は、質量スペクトルと略同時に吸収・発光・散乱スペクトルを分析する分析装置および分析方法に関するものである。

【背景技術】**【0002】**

医薬分野等において、蛋白質や核酸などの生体高分子および、薬物の同定といった研究として、これらの分子構造の解析は重要度を増している。分子構造の解析として、特に質量分析法が知られている。また近年では、有機金属錯体の解析も盛んに行われ、上記と同じく、質量分析法が用いられている。

【0003】

質量分析法において、これまでに様々なイオン化法が研究開発されており、試料の特性に応じてこれらのイオン化法の中から最適なものが用いられる。その中の一つとして知られているエレクトロスプレーイオン化法は、エレクトロスプレー（静電噴霧）現象を利用した方法である。このイオン化法は、試料分子のイオン化に際して、高熱をかけたり高エネルギー粒子を衝突させたりしないため、非常にソフトなイオン化法であるという特徴をもつ。したがって、このエレクトロスプレーイオン化法を用いて行うエレクトロスプレーイオン化質量分析法は、蛋白質、核酸などの生体高分子および、薬物の同定、並びに有機金属錯体などの分子構造を解析する上で、これらの試料をほとんど破壊することなく、容易にイオン化できるということから、これらの試料を用いた研究分野においては、その分析手段として欠かせないものとなっている。

【0004】

また上記質量分析と同様、赤外、可視、紫外などの各種吸収・発光・散乱スペクトルも、溶液中における蛋白質等の生体高分子および、有機金属錯体等のみならず、種々の化学物質の構造情報を得るために欠くことのできない分析手段であることが知られている。なお、上記質量分析を含め、これら各種のスペクトルを利用した化合物の構造決定に際しては、最低2つ以上の異なる分析手法を用いて総合的に判断することにより、より信頼性の高い分析結果が得られる。

【0005】

このように2つの分析手法を同時に行うことができるものとしてLC-MS/NMRの（J EOL社製）ような技術が開発されているが、NMR解析は化学反応の中間体のように、非常に寿命の短い化学種の構造決定は困難である。

【0006】

一方、上述した吸収・発光・散乱スペクトルおよび、質量スペクトルは、短時間で測定が可能であるということから、非常に寿命の短い化学種の構造決定に好適である。すなわち、被験試料をこれら複数のスペクトル分析手段によって略同時に実時間で測定することが出来れば、不安定な反応中間体等の構造に関する正確な解析が可能となる。

【非特許文献1】 杉本直己編 「生命化学のニューセントラルドクマ」化学同人出版（2002年）

【発明の開示】**【発明が解決しようとする課題】****【0007】**

上述したように、吸収・発光・散乱スペクトルおよび、質量スペクトルは何れも短時間で測定が可能であるということが知られており、かつ、これらの分析手法により生体反応の直接観察、モデル金属錯体を用いた生体機能の解明、化学反応における反応中間体の解析等の重要な情報が得られる。そのため、非特許文献1には、同一の被験試料を用いて、吸収・発光・散乱スペクトルおよび、質量スペクトルを略同時に実時間で測定するという

技術構想が本願発明者らによって提案されている。

【0008】

しかしながら、上記非特許文献1には、吸収・発光・散乱スペクトル、および、質量スペクトルの略同時測定を実現するための手段については何ら開示されていない。そのため、現状では、質量スペクトルと、吸収・発光・散乱スペクトルとを、同じ反応液から略同時にサンプリングし、分析することは不可能であった。

【0009】

この理由としては、吸収・発光・散乱スペクトル（赤外吸収スペクトル、可視・紫外吸収スペクトル、発光スペクトル、ラマン散乱スペクトル）と、質量スペクトル分析との間で、被験試料の最適濃度に差があることが挙げられる。具体的に説明すると、以下の通りである。

【0010】

一般に、質量分析を、具体的には上述したエレクトロスプレー質量分析を行うための被験試料の最適濃度は、 $10\mu\text{mol/L}$ 以下であるのに対し、赤外吸収スペクトルを測定するための最適濃度は 1mmol/L 以上、可視・紫外吸収スペクトルおよび発光スペクトルを測定するための最適濃度は $100\mu\text{mol/L}\sim 10\text{mmol/L}$ 、ラマン散乱スペクトルを測定するための最適濃度は $10\mu\text{mol/L}\sim 1\text{mmol/L}$ である。すなわち、エレクトロスプレー質量分析と、各種のスペクトル測定の間には、場合によって1000倍以上の最適濃度差が存在する。したがって、同じ被験試料溶液から質量スペクトルの測定と吸収・発光・散乱スペクトルの測定とを略同時に行うことは不可能であった。

【0011】

例えば、吸収・発光・散乱スペクトル測定用に調整された比較的濃度の高い被験試料溶液を用いて質量スペクトルを測定しようとする、イオン気化された多量の被験試料イオンが、質量分析部に流入し、高電流が流れて装置回路の損傷などが起こる可能性がある。また、比較的濃度の高い被験試料溶液を希釈することで質量スペクトルを測定しようすると、約1000倍の希釈が必要となり、その系の状態や時間などを考慮すると、同時測定ということが実質的に困難となるため、好ましい方法ではない。

【0012】

本発明は、上記の問題点に鑑みてなされたものであり、その目的は、質量スペクトルの分析および吸収・発光・散乱スペクトルの分析を略同時に行うことができる分析装置を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0013】

本願発明者らは、上記の問題点に鑑みて鋭意検討した結果、吸収・発光・散乱スペクトルの測定に用いる比較的高濃度な被験試料を用いた場合であっても、イオン気化することができ、質量スペクトルが測定できることを見出し、本発明を完成させるに至った。

【0014】

すなわち、本発明に係る分析装置は、吸収スペクトル・発光スペクトル・散乱スペクトルの中の少なくとも1つを分析する吸収・発光・散乱スペクトル分析計と、質量スペクトルを分析する質量スペクトル分析計とを備えた分析装置であって、上記吸収・発光・散乱スペクトル分析計と上記質量スペクトル分析計とは、同一の被験試料を分析対象としており、上記質量スペクトル分析計内には、イオン気化された被験試料イオンのイオン量を制御するイオン導入量制御手段が備えられていることを特徴としている。

【0015】

反応中間体のように不安定な被験試料を複数のスペクトルにより解析する場合、スペクトルの分析は短時間で行う必要がある。吸収・発光・散乱スペクトルおよび、質量スペクトルは何れも短時間で測定が可能であるということが知られており、かつ、これらの分析手法は、生体反応の直接観察、モデル金属錯体を用いた生体機能の解明、化学反応における反応中間体の解析等の重要な情報が得られることが知られている。しかしながら、このような場合に、複数のスペクトルそれぞれに対して個別に被験試料溶液を設けると、それ

それぞれの被験試料溶液の反応段階には、僅かではあっても差が生じる可能性が高いため、複数のスペクトルによる分析結果に差が生じる。そのため、同一の被験試料からこれら複数のスペクトルを分析できる装置の開発が望まれていた。

【0016】

しかしながら上述したように、これまでは、上記質量スペクトルを測定する装置において、最適濃度差の問題から、上記吸収・発光・散乱スペクトルを同時に測定できる装置は存在しなかった。

【0017】

そこで、上述した分析装置を用いることで、質量スペクトル分析では、被験試料の濃度が質量スペクトル分析における最適濃度よりも高濃度であった場合でも正常なスペクトル分析が可能となる。すなわち、最適濃度よりも高濃度でイオン気化された被験試料イオンの量を上記イオン導入量制御手段によって制御し、質量分析部に導入することができるため、正常な質量スペクトル分析が可能となる。上述したように吸収・発光・散乱スペクトル分析に用いられる被験試料の最適濃度は、質量スペクトル分析における最適濃度よりも高濃度である。したがって、本発明の分析装置は、最適濃度差の問題を解消し、質量スペクトル分析と吸収・発光・散乱スペクトル分析とを略同時に行うことができる。質量スペクトル分析と吸収・発光・散乱スペクトル分析とを同一の被験試料を用いて、略同時に行うことができることによって、生体反応の直接観察、モデル金属錯体を用いた生体機能の解明、化学反応における反応中間体の解析等において複数のスペクトルによる解析が可能となることから信頼性の高い情報を得ることができる。

【0018】

また、本発明に係る分析装置は、上記イオン導入量制御手段が、上記質量スペクトル分析計に設けられたイオン化室内に備えられていることが好ましい。

【0019】

これにより、本発明に用いられる被験試料の濃度は、質量スペクトル分析における最適濃度よりも高濃度であっても、正常な質量スペクトル分析を行うことができる。

【0020】

すなわち、最適濃度よりも高濃度の被験試料を質量スペクトル分析に用いた場合であっても、イオン気化された多量の被験試料イオン量を上記イオン導入量制御手段によって制御できる。そのため、最適なイオン量を質量分析部に導入させることができる。したがって、質量分析部を損傷することなく、正確な質量スペクトルが分析できる。

【0021】

また、本発明に係る分析装置は、上記イオン導入量制御手段が、位置調整ノブによって位置調整できることが好ましい。

【0022】

イオン気化される被験試料イオンの量および、キャピラリーの先端からイオン引出電極（オリフィス）の方向へ排出される被験試料イオンの移動度は、被験試料を溶解させる溶媒によって異なるため、これらの条件によって質量スペクトル分析計に導入される被験試料イオン量は異なってくる。すなわち、これらの条件によって被験試料イオン量の制御量も異なってくる。

【0023】

したがって、上記イオン導入量制御手段が上記位置調整ノブによって位置調整を行うことができることにより、質量スペクトル分析計に導入される被験試料イオン量を最適な量に制御することが可能となる。

【0024】

また、本発明に係る分析装置は、上記イオン導入量制御手段が、非導電性材料であることが好ましい。

【0025】

これにより、被験試料の高電圧印加、すなわち被験試料のイオン気化を妨げることなく、質量分析部に導入される被験試料イオン量を制御することが可能となる。

【0026】

また、本発明に係る分析装置は、上記イオン導入量制御手段が、網目構造であることが好ましい。

【0027】

上述した構成とすることで、キャピラリーの先端から排出された被験試料イオン自体に影響を与えることなく、その量を制御することが可能となる。すなわち、被験試料イオンのイオン引出電極への導入量を、例えば他の電極を設けることにより制御した場合、装置全体のバランスが崩れるばかりでなく、高価なものになってしまう。被験試料イオン全体に影響を及ぼしてしまうため、正確な質量スペクトル測定ができなくなる。

【0028】

そこで、被験試料イオンの制御を、被験試料イオンが網目を通るか通らないかによって制御する方法をもちいることにより、質量分析部に導入したい被験試料イオンには何ら影響を及ぼすことなく、質量分析部に導入することができるため、正確な質量スペクトルの測定を行うことが可能となる。

【0029】

また、上記イオン導入量制御手段は、従来のエレクトロスプレーイオン化質量分析装置の構造を変えるものではなく、網目構造の上記イオン導入量制御手段を従来のエレクトロスプレーイオン化質量分析装置に付属させる構成であることから、従来のエレクトロスプレーイオン化質量分析装置の製造効率を大きく変えることなく、容易に高濃度の被験試料に対応することができる分析装置を提供することが可能となる。

【0030】

また、本発明に係る分析装置において、上記イオン導入量制御手段の網目構造を構成する貫通穴の径は、 $1\mu\text{m}$ ～ 5mm の範囲であることが好ましい。

【0031】

このような構成とすることにより、多種の高濃度被験試料に対応することができる。すなわち、イオン気化される被験試料は、その種類によって濡れ性などが異なる。ここで本発明における濡れ性とは、イオン気化された被験試料のイオン導入量制御手段に対する親和性のことである。そのため、上記網目構造を構成する貫通穴の大きさは、被験試料の性質に対応する必要がある。すなわち、上記貫通穴の大きさを上記の範囲とすることで、様々な種類の高濃度被験試料に応じることができ、どのような高濃度被験試料であっても常に一定のイオン量を質量分析部に導入することが可能となる。

【0032】

したがって、様々な種類の高濃度被験試料に対して、上記貫通穴の大きさを変化させることのみで、対応することができ、正確な質量分析スペクトルを測定することが可能となる。

【0033】

ここで、上記吸収・発光・散乱スペクトル分析計とは、赤外吸収スペクトル、可視・紫外吸収スペクトル、蛍光スペクトル、ラマン散乱スペクトルの中の少なくとも1つを分析するものである。

【0034】

また、本発明に係る分析装置は、上記被験試料が、温度制御されることが好ましい。

【0035】

これにより、被験試料をより正確に測定することが可能となる。すなわち、例えば被験試料の温度によって、反応速度が遅くなるような被験試料である場合に、その反応中間体を測定しようとする、温度を制御しながら測定されることが好ましい。したがって、上記の構成とすることにより、被験試料のより正確な情報を得ることが可能となる。

【0036】

また、本発明に係る分析装置において、上記被験試料は、反応溶液であり、反応開始から数秒で反応が終結するものであることが好ましい。

【0037】

このような被験試料を用いる場合に、本発明に係る分析装置は、高い効果を有するものである。すなわち、同一のサンプルから、略同時に、短時間で測定を行うことのできる各種スペクトルを複数用いて測定することができるため、反応開始から数秒で反応を終結する被験試料であっても、反応中間体について正確な情報を得ることが可能となる。

【0038】

また、本発明に係る分析方法は、被験試料の吸収スペクトル、発光スペクトル、散乱スペクトルを分析する吸収・発光・散乱スペクトル分析工程と、上記被験試料と同一の被験試料をイオン気化して得られる被験試料イオンの量を制御して質量スペクトルを分析する質量スペクトル分析工程とからなる分析方法であって、上記吸収・発光・散乱スペクトル分析工程と上記質量スペクトル分析工程とが略同時に実時間で行われることを特徴としている。

【0039】

これにより、刻一刻と変化する化学反応溶液のような被験試料を、吸収・発光・散乱スペクトルと質量スペクトルによって、両者を略同時に、かつ、実時間で分析することができる。すなわち、これまでに問題とされてきた両者の最適濃度差の違いを、イオン気化された被験試料イオンの量を制御することによって解消することにより、化学反応の反応中間体の構造などを、得られた複数のスペクトルから正確に分析・把握することが可能となる。

【0040】

なお、上記「実時間で」とは、「経時的に」ということであり、刻一刻と変化する化学反応溶液のような被験試料を経時的に分析するということを意味している。

【0041】

また、本発明に係る分析方法は、上記質量スペクトル分析工程におけるイオン化法が、エレクトロスプレーイオン化法を用いて行われることが好ましい。

【0042】

エレクトロスプレーイオン化法を用いることにより、被験試料は溶液状態のままで質量スペクトル分析を行うことが可能となる。また被験試料溶液を測定することから、溶液中における反応過程を反応開始から反応終結まで実時間でスペクトルを解析することが可能となる。また、上述したようにエレクトロスプレーイオン化法はエレクトロスプレー（静電噴霧）現象を利用している。したがって、蛋白質、核酸などの生体高分子および、薬物の同定、並びに有機金属錯体などの分子構造を解析する場合に、これらの試料をほとんど破壊することがなく、容易にイオン化することができる。

【0043】

したがって、これらの試料を用いてその反応中間体等の分析を行う場合に、エレクトロスプレーイオン化法を用いることで、正確な質量スペクトルを測定することができる。

【発明の効果】

【0044】

本発明に係る分析装置は、吸収スペクトル・発光スペクトル・散乱スペクトルの中の少なくとも1つを分析する吸収・発光・散乱スペクトル分析計と、質量スペクトルを分析する質量スペクトル分析計とを備えた分析装置であって、上記吸収・発光・散乱スペクトル分析計と上記質量スペクトル分析計とは、同一の被験試料を被験試料対象としており、上記被験試料と上記質量スペクトル分析計との間には、イオン量を制御するイオン導入量制御手段が備えられていることを特徴としている。

【0045】

上述した分析装置を用いることで、質量スペクトル分析では、被験試料の濃度が質量スペクトル分析における最適濃度よりも高濃度であった場合でも正常なスペクトル分析が可能となる。すなわち、最適濃度よりも高濃度でイオン気化された被験試料イオンの量を上記イオン導入量制御手段によって制御し、質量スペクトル分析計に導入することができるため、正常な質量スペクトル分析が可能となる。上述したように吸収・発光・散乱スペクトル分析に用いられる被験試料の最適濃度は、質量スペクトル分析における最適濃度より

も高濃度である。したがって、本発明の分析装置は、最適濃度差の問題を解消し、質量スペクトル分析と吸収・発光・散乱スペクトル分析とを略同時に行うことができる。質量スペクトル分析と吸収・発光・散乱スペクトル分析とを同一の被験試料を用いて、略同時に行うことができることによって、生体反応の直接観察、モデル金属錯体を用いた生体機能の解明、化学反応における反応中間体の解析等において複数のスペクトルによる解析が可能となることから信頼性の高い情報を得ることができる。

【0046】

また、本発明に係る分析方法は、被験試料の吸収スペクトル、発光スペクトル、散乱スペクトルを分析する吸収・発光・散乱スペクトル分析工程と、上記被験試料をイオン化して得られる被験試料イオンの量を制御して質量スペクトルを分析する質量スペクトル分析工程とが設けられ、上記吸収・発光・散乱スペクトル分析工程と上記質量スペクトル分析工程とが略同時に実時間で実行されることを特徴としている。

【0047】

これにより、刻一刻と変化する化学反応溶液のような被験試料を、吸収・発光・散乱スペクトルと質量スペクトルによって、両者を略同時に、かつ、実時間で分析することができる。すなわち、これまでに問題とされてきた両者の最適濃度差の違いを、イオン化された被験試料イオンの量を制御することによって解消することにより、化学反応の反応中間体の構造などを、得られた複数のスペクトルから正確に分析・把握することが可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0048】

本発明の一実施形態について図1～図4に基づいて説明すると以下の通りである。なお、本発明はこれに限定されるものではない。

【0049】

本実施の形態では、本発明の基本原理について説明し、その後、本発明に係る分析装置と、本発明に係る分析方法とを詳細に説明する。

【0050】

(1) 本発明の基本原理

図2は、本発明に係る分析装置におけるイオン化室に、多量の荷電イオンが排出している様子を模式的に示したものである。上述したように、イオン化室の荷電イオンは、イオン引出電極（オリフィス）を経て、続く質量分析部において質量スペクトルが測定される。

【0051】

上述したように、被験試料の濃度が高く、上記イオン化室に多量の被験試料イオンが存在する場合、この多量の被験試料イオンがそのまま質量分析部に流入すると、高電流が流れ、装置回路の損傷などが起こる可能性がある。

【0052】

そこで、図2に示すように、図示しない上記質量分析部に流入する被験試料イオン量を制御するイオン導入制御手段8を上記イオン引出電極の導入口よりスプレヤー側に設ける。これにより、質量分析部に導入される被験試料イオンの量は、従来の質量分析装置において最適濃度とされる濃度の被験試料をイオン化した状態の被験試料イオン量と略同量となる。そのため、通常のイオン量で質量スペクトルの測定を行うことが可能となる。具体的に説明すると、以下の通りである。

【0053】

上記イオン導入制御手段8は、イオン化室側からイオン引出電極側に貫通する穴を複数設けた網目構造となっている。上記貫通する穴の直径は、 $1\mu\text{m}$ ～ 5mm の範囲である。この直径は、被験試料の濡れ性の問題等によって適宜設定される。被験試料として、従来の質量スペクトル測定に用いられる最適濃度の被験試料と比較して高い濃度のものが用いられた場合、イオン化室では高濃度の被験試料に高電圧を印加して、被験試料を荷電イオンにする。イオン化した多量の被験試料イオンは、通常と同じように、イオン引出電極

の方向へ移動する。しかしながら、上述した位置に設けられたイオン導入制御手段によって、イオン引出電極に導入されるイオン量は制御される。すなわち、多量に生成された被験試料イオンは、上記イオン導入制御手段の表面に付着する被験試料イオンと、上記イオン導入制御手段の貫通する穴からイオン引出電極側に通過する被験試料イオンとに分かれることで、質量分析部に導入される被験試料イオンの量を低減させることができる。

【0054】

これにより、本発明に係る分析装置は、被験試料の濃度が、分析における最適濃度よりも高濃度である場合であっても正常に質量スペクトルを測定することができる。

【0055】

(2) 本発明に係る分析装置

続いて、本発明に係る分析装置について詳しく説明する。図1は、本発明にかかる分析装置の一例であって、質量分析に最適な濃度以上、すなわち最適濃度よりも高濃度に調整された被験試料を用いる分析装置10の基本構造を示した図である。図1に示す分析装置10は、吸収スペクトル・発光スペクトル・散乱スペクトルの中の少なくとも1つを分析する吸収・発光・散乱スペクトル分析計30と、質量スペクトルを分析する質量スペクトル分析計20とが備えられている。そして、吸収・発光・散乱スペクトル分析計30および質量スペクトル分析計20は、ともに被験試料の入った反応容器1と接続されており、同一の被験試料を分析対象とするものである。

【0056】

つまり、分析装置10には、被験試料に高電圧を印加し、イオン気化した被験試料イオンを、イオン化室に設けた上記イオン導入制御手段8を通過させることにより、導入される被験試料イオンの量を制御して質量スペクトルを測定する質量スペクトル分析計20が備えられているとともに、当該質量スペクトル測定の被験試料と同一の被験試料を用いて、略同時に、吸収スペクトル・発光スペクトル・散乱スペクトルを測定することのできる吸収・発光・散乱スペクトル分析計30が備えられている。

【0057】

なお、本実施の形態において説明する分析装置10は、特に、エレクトロスプレーイオン化法を備えたエレクトロスプレーイオン化質量分析装置に基づいて説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0058】

分析装置10は、図1に示すように、反応容器1、不活性ガス導入管2、キャピラリー3、スプレイヤー4、マグネティックスターラコンローラー5、恒温槽6、シース管7、イオン導入量制御手段8、イオン引出電極9、スペクトル観察用プローブ12を備えている。なお、上記不活性ガス導入管2、上記キャピラリー3、上記スプレイヤー4、上記シース管7、上記イオン導入量制御手段8、上記イオン引出電極9は、上記質量スペクトル分析計20内に備えられており、上記スペクトル観察用プローブ12は、吸収・発光・散乱スペクトル分析計30内に備えられている。

【0059】

上記反応容器1は、上述したような被験試料を含む溶液が入れられ、後述する上記恒温槽6に設置され、所定温度に制御される。また、上記反応容器1内には、同じく後述する上記マグネティックスターラコンローラー5により容器内の被験試料溶液を攪拌するためのマグネティックスターラがある。したがって、上記反応容器1は、上記恒温槽6に設置され、温度制御された状態で、被験試料を攪拌し、被験試料の温度を均一にすることができる。さらに、上記反応容器1の上部は、後述する不活性ガス導入管2とキャピラリー3とスペクトル観察用プローブ12が配置されており、これらを固定する目的で上記反応容器1の上部には、ゴム栓が配置されている。上記反応容器1の構造としては、上記恒温槽6に設置可能な構造であればよく、その材質は例えばガラスやステンレスを用いることができる。

【0060】

なお、上記マグネティックスターラコンローラー5は、上述したように、上記恒温槽

6 に設置された上記反応容器 1 内の被験試料溶液を攪拌するために設けられている。本実施の形態においては、上述した攪拌手段として上記マグネティックスターラコンローラー 5 を挙げたが、これに限定されるものではなく、被験試料溶液の温度および被験試料溶液濃度を均一にすることが出来る攪拌手段が備えられているものであればよく、機械式のものであってもよい。

【0061】

なお、被験試料溶液の溶媒としては、従来のエレクトロスプレーイオン化質量分析装置によって分析される被験試料溶液の溶媒を用いればよく、被験試料の性質に応じて適宜用いることができるが、メタノールまたは後述するようなアセトニトリル溶液であることが好ましい。また被験試料溶液の濃度としては、エレクトロスプレーによる被験試料のイオン化効率によって異なるが、蛋白質や核酸などの高分子化合物では、約 $1 \sim 20 \text{ pmol} / \mu\text{L}$ の範囲が好ましく、 1000 Da 以下の低分子化合物では、約 $1 \sim 50 \text{ ng} / \mu\text{L}$ の範囲が好ましい。

【0062】

上記不活性ガス導入管 2 は、その一端が上記反応容器 1 の上部、具体的には、上記不活性ガス導入管 2 の一端が、上記反応容器 1 内の被験試料溶液に接触しない部分にあり、もう一方の端からは、図示しない不活性ガス源から不活性ガスが導入される。導入される上記不活性ガスの圧力は、図示しない圧力調整器によって調整される。上記不活性ガスの圧力が調整されることによって、上記反応容器 1 内の被験試料溶液は、後述する上記キャピラリー 3 を通じて上記スプレーヤー 4 に送り込まれる。具体的には、上記キャピラリー 3 から上記スプレーヤー 4 に送り込まれる被験試料溶液の流量が、好ましくは $2 \sim 4 \mu\text{L} / \text{分}$ 、より好ましくは約 $3 \mu\text{L} / \text{分}$ となるように、上記不活性ガスの圧力が調整されることが好ましい。上記不活性ガス導入管 2 の構造としては、例えば内径 0.8 mm 、外径 1.58 mm の PTFE チューブを用いることができるが、本実施の形態における上記不活性ガス導入管 2 はこれに限定されるものではない。なお、上記不活性ガスには、例えばアルゴンガスなどを用いることができる。

【0063】

上記キャピラリー 3 は、上記反応容器 1 と上記スプレーヤー 4 とを繋いでおり、上記反応容器 1 内の被験試料溶液は、上記不活性ガス導入管 2 から導入された不活性ガスによる圧力によって上記キャピラリー 3 に通され、上記スプレーヤー 4 に送り込まれる。上記キャピラリー 3 の長さは、上記恒温槽 6 によって温度制御された被験試料溶液の温度変化を極力防ぐため、かつ、測定時間のずれを極力小さくするために、比較的短いものが好ましく、例えば長さ 20 cm で、内径 0.075 mm の不活性化シリカキャピラリーチューブを用いることができるが、本実施の形態における上記キャピラリー 3 はこれに限定されるものではない。

【0064】

上記スプレーヤー 4 は、後述する上記シース管 7 が、上記キャピラリー 3 と同軸形状に構成された二重構造となっている。上記スプレーヤー 4 に高電圧がかけられることにより、上記キャピラリー 3 に導入された被験試料溶液をキャピラリー 3 の一端から排出する。上記スプレーヤー 4 に印加される電圧は、約 $3 \sim 6 \text{ kV}$ の範囲であることが好ましく、約 $4 \sim 5 \text{ kV}$ の範囲であることがより好ましい。

【0065】

なお、オペレーターは、被験試料の分析スペクトルを見ながら、上記スプレーヤー 4 の先端を図示しない位置調整ノブによって最適な位置に調整することによっても、最適な分析スペクトルを得ることが可能である。

【0066】

上記恒温槽 6 は、上述したように上記反応容器 1 内の被験試料溶液を温度制御するための温度制御手段として設けられる。上記恒温槽 6 としては、例えば水を入れた恒温槽 6 を温度制御し、恒温槽 6 の中に上記反応容器 1 を入れることで反応容器 1 内の被験試料溶液の温度を制御することができる。また、例えば被験試料溶液を氷点下の温度に制御を行う

場合には、液体窒素を用いることができ、液体窒素の中に上記反応容器 1 を浸すことで、被験試料溶液を冷却することができる。液体窒素を用いることにより、被験試料として極低温のような低温でのみ安定な被験試料の測定を可能にする。

【0067】

さらに、上記恒温槽 6 のように被験試料の温度を制御するための温度制御手段としては、上述したように水などの冷媒に限定されるものではなく、上記反応容器 1 を密着して保持できるような構造が備えられた金属を用いることも可能である。すなわち、この金属を電子機器などによって温度制御することで、この金属と密着した形で上記反応容器 1 を設置し、反応容器 1 内の被験試料溶液の温度を制御することも可能である。上記金属には、銅やアルミなどの熱伝導率が比較的高いものが好ましい。

【0068】

上記シース管 7 は、上述したように、上記キャピラリー 3 の外側にこれと同軸形状に構成されており、図示しないネブライジングガス供給源から供給されたネブライジングガスを、上記キャピラリー 3 から排出される被験試料と同軸方向に排出する。

【0069】

上記イオン導入量制御手段 8 は、上記スプレイヤー 4 に高電圧が印加され、上記キャピラリー 3 の先端から排出される被験試料イオンの、上記イオン引出電極 9 に導入される量を制御するために設けられている。具体的に説明すると以下の通りである。

【0070】

上記イオン導入量制御手段 8 は、イオン化室内に、図示しない支持手段によって支持されている。具体的には、被験試料がイオン気化されながら上記キャピラリー 3 の先端から排出される位置から、上記イオン引出電極 9 までの間に備えられ、上記イオン導入量制御手段 8 が、イオン気化された被験試料イオンの移動方向に略垂直になるように設けられている。

【0071】

上記イオン導入量制御手段 8 は、複数の貫通穴によって構成される網目構造を備えているものが好ましく、上記貫通穴の開口部が、上記キャピラリー 3 からの被験試料イオンの排出側と、上記イオン引出電極 9 の導入側とに向けられるように設けられることが好ましい。上記イオン導入量制御手段 8 の大きさとしては、キャピラリー 3 から排出されてイオン引出電極 9 方向へ拡散する被験試料イオンの拡散範囲を網羅する大きさであることが好ましく、少なくとも上記イオン引出電極 9 の導入口を覆う大きさであることが好ましい。上記イオン導入量制御手段 8 の大きさが、被験試料イオンの拡散範囲を網羅する大きさである場合は、イオン導入量制御手段 8 の設置位置は、上述した位置、すなわち被験試料がイオン気化されながら上記キャピラリー 3 の先端から排出される位置から、上記イオン引出電極 9 までの間に備えられればよく、特に限定されるものではない。しかしながら、上記イオン導入量制御手段 8 の大きさが上記拡散範囲を網羅するものではない場合、イオン導入量制御手段 8 の設置位置は、上記イオン引出電極 9 の導入口付近であることが好ましい。この理由としては、上記イオン導入量制御手段 8 の大きさが被験試料イオンの拡散範囲を網羅していない場合に、上記イオン導入量制御手段 8 をキャピラリー 3 側に設けてしまうと、上記イオン導入量制御手段 8 の制御範囲以外に拡散した被験試料イオンが上記イオン引出電極 9 に導入されてしまう可能性があるため、上記イオン導入量制御手段 8 による被験試料イオン量の正確な制御が困難になるためである。また、上記貫通穴は、直径が $1\mu\text{m}$ ～ 5mm の範囲であることが好ましい。上記の範囲とする理由は、イオン気化される被験試料は、その種類によって濡れ性などが異なるためであり、その性質の違いによって直径を適宜設定することが好ましい。また、上記イオン導入量制御手段 8 の厚みは、比較的薄いものが好ましい。具体的には、 $1\mu\text{m}$ ～ 1mm の範囲であることが好ましい。なお、上記イオン導入量制御手段 8 の厚みとは、被験試料イオンの移動方向に対するイオン導入量制御手段 8 の幅のことである。上記の範囲とする理由は、イオン導入量制御手段 8 の厚みが比較的厚いものになると、被験試料イオンが上記貫通穴を通過中に貫通穴の壁に付着してしまい、上記イオン導入量制御手段 8 による制御を正確に行うことができない

めである。

【0072】

また、上記イオン導入量制御手段8は、オペレーターが被験試料の分析スペクトルを見ながら、図示しない位置調整ノブによって当該イオン導入量制御手段8の位置を最適な位置に調整することができる。これにより、最適な分析スペクトルを得ることが可能である。

【0073】

なお、上記イオン導入制御手段8は、着脱可能な構造となっており、被験試料の濃度が、質量スペクトル測定に最適な濃度である場合には、図2に示す位置から取り除くことも可能である。すなわち、本実施の形態における分析装置10は、必ずしも質量スペクトル測定と同時に吸収・発光・散乱スペクトル測定を行うものではなく、両者を独立して測定することも可能である。

【0074】

以上のように、本実施の形態における上記分析装置10は、従来の質量分析装置とは異なり、上記イオン導入量制御手段8を、上記キャピラリー3先端から上記イオン引出電極9までの間に設けることにより、質量分析に最適な被験試料濃度よりも高い濃度の被験試料を用いた場合であっても、正確な質量分析を行うことが可能となる。すなわち、本実施の形態の分析装置10は、質量分析に最適な被験試料濃度よりも高い濃度を最適濃度にもつ吸収・発光・散乱スペクトルの測定を、質量分析と同一被験試料から略同時に行うことが可能となる。

【0075】

上記イオン引出電極9は、スプレイヤー4から排出された帯電した被験試料を、当該イオン引出電極9へ誘導する。誘導され、上記イオン引出電極9を通った荷電被験試料イオンは、図示しない質量分析部によって質量数を分析される。

【0076】

上記スペクトル観察用プローブ12は、上述したように、その一端が上記反応容器1内の被験試料内に位置するように設けられている。上記スペクトル観察用プローブ12によって、上記反応容器1内の被験試料の吸収スペクトル・発光スペクトル・散乱スペクトルが測定される。

【0077】

なお、本実施の形態における分析装置10のイオン化法としては、エレクトロスプレーイオン化法を用いて行われることが好ましい。エレクトロスプレーイオン化法を用いることにより被験試料は溶液状態のまま質量スペクトル分析を行うことが可能となる。また被験試料溶液を測定できることから、溶液中における反応開始から反応終結までの過程を実時間にてスペクトル解析することが可能となる。また、上述したようにエレクトロスプレー（静電噴霧）現象を利用している。したがって、蛋白質、核酸などの生体高分子および、薬物の同定、並びに有機金属錯体などの分子構造を解析する場合に、これらの試料をほとんど破壊することがなく、容易にイオン化することができる。

【0078】

したがって、これらの試料を用いてその反応中間体等の分析を行う場合に、エレクトロスプレーイオン化法を用いることで、正確な質量スペクトルを測定することができる。

【0079】

なお、本実施の形態に係る上記分析装置10は、質量スペクトルと吸収スペクトル、質量スペクトルと発光スペクトルといった2つのスペクトルの同時測定だけでなく、質量スペクトルと吸収スペクトルと発光スペクトルといった3つ以上のスペクトル、さらには、質量スペクトルと吸収スペクトルと発光スペクトルと散乱スペクトルといった4つのスペクトルを略同時に分析するものであってもよい。このように、オペレーターによって複数のスペクトルの中から適宜選択して分析を行うこともできるため、上記分析装置10には、図示しないスペクトル選択手段が設けられている。

(3) 本発明に係る分析方法

次に、上述した本発明に係る分析方法について説明する。

【0080】

分析方法は、まず、被験試料に溶媒を加えることによって被験試料溶液を調整し、当該被験試料溶液を、上記反応容器 1 に入れ、温度調節した上記恒温槽 6 に設置する。上記反応容器 1 内の被験試料溶液は、マグネティックスターラコントローラー 5 によって制御されたマグネティックスターラによって攪拌される。

【0081】

次に、上記不活性ガス導入管 2 の一端に繋がれている不活性ガスの圧力調整器を調整することにより、不活性ガスが反応容器 1 内に排出され、被験試料溶液はキャピラリー 3 を介してスプレイヤー 4 へ導入される。スプレイヤー 4 に導入された被験試料溶液は、高電圧が印加され、キャピラリー 3 の先端から排出される。

【0082】

上記キャピラリー 3 の先端から排出された多量の帯電した霧状の粒子被験試料は、その後、蒸発および、冷却された窒素ガスである乾燥ガスによって溶媒を失い、粒子の大きさを小さくし、溶媒から解放された多量の荷電被験試料イオンは、ついには粒子から離れていくと考えられる。粒子から離れた荷電被験試料イオンは、上記イオン導入量制御手段 8 によってその量を制御され、上記イオン引出電極 9 の導入口に導入される。上記イオン引出電極 9 に導入された最適量の荷電被験試料イオンは、図示しない質量分析部によって分析される。上述の手順で実施されるのが質量スペクトル分析工程である。

【0083】

本発明の分析方法では、上述した質量スペクトル分析工程と略同時並行に上記反応容器 1 内の被験試料溶液は、上記スペクトル観察用プローブ 12 によって、吸収・発光・散乱スペクトルのうち少なくとも 1 つのスペクトル分析が行われる。この工程が、吸収・発光・散乱スペクトル分析工程である。

【0084】

なお、本実施の形態に係る上記分析方法は、質量スペクトルと吸収スペクトル、質量スペクトルと発光スペクトルといった 2 つのスペクトルの同時測定だけでなく、質量スペクトルと吸収スペクトルと発光スペクトルといった 3 つ以上のスペクトル、さらには、質量スペクトルと吸収スペクトルと発光スペクトルと散乱スペクトルといった 4 つのスペクトルを略同時に分析するものであってもよい。このような場合は、図示しないスペクトル選択手段によって分析しようとするスペクトルを適宜選択することができる。

【0085】

以下に、本発明を実施例に基づいて詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【実施例】

【0086】

本発明の実施例として、図 1 に示す分析装置 10 を用いて、鉄 (III) 錯体を用いる酸化反応の機構解明に利用した実施例について説明する。具体的に説明すると以下の通りである。鉄 (III) 錯体は、基質に 2 つの酸素を添加する酵素であるリポキシゲナーゼの活性中心モデル錯体として人工的に合成されたものである (Seiji, Ogo; Ryo, Yamahara; Mark, Roach; Tomoyoshi, Suenobu; Michihiko, Aki; Takashi, Ogura; Teizo, Kitagawa; Hideki, Masuda; Shunichi, Fukuzumi; Yoshihito, Watanabe. Inorg. Chem. 2002, 41, 5513-5520.)。なお、本実施例では、上記鉄 (III) 錯体と 13-HPOD (13(S)-Hydroperoxy(9Z, 11E)-OctadecaDienoic acid) との反応を、本実施例による質量スペクトルと、可視-紫外吸収スペクトルとの同時測定によって分析した結果を示すものである。

【0087】

図 3 は、本実施例における上記鉄 (III) 錯体と上記 13-HPOD との化学反応式を示したものである。

【0088】

なお、本酵素モデル反応の詳細な検討は、生物の代謝・老化機構の解明に重要な知見を

与えるだけでなく、新規酸化反応触媒の開発にも非常に有用な知見を与える。

【0089】

上記鉄(III)錯体を、図1に示した反応容器1中において、不活性ガス雰囲気下で、完全に脱気および脱水したアセトニトリルを用いて、鉄(III)錯体のアセトニトリル溶液を調整した(3 mL、500 μ M)。得られた溶液は、上記恒温槽6によって50℃に維持され、マグネティックスターラコントローラー5によって制御されたマグネティックスターラによって攪拌した。

【0090】

次に、上記不活性ガス導入管2の一端に繋がれているアルゴンガスの圧力を調整することにより、キャピラリー3を通過する被験試料の流量が約3 μ L/分になるように調整し、被験試料の質量スペクトルおよび可視-紫外吸収スペクトルの分析を開始した。

【0091】

次に、上記鉄(III)錯体のアセトニトリル溶液が入った上記反応容器1内に13-HPOD(分子量312.4)を鉄(III)錯体に対して5当量のmol比になるようにシリンジを用いて加えた(2.3 mg、7.4 μ mol)。さらに13-HPODの活性化のために塩基Et₃N(トリエチルアミン、分子量101.2)を、上記鉄(III)錯体に対して1当量のmol比で加える(150 μ L、1.5 μ mol)ことにより反応を開始した。以上の被験試料のエレクトロスプレー質量スペクトル(陽イオンモード)および可視-紫外吸収スペクトルの同時測定の実行を行った。分析の結果を、図4および図5に示す。図4には、エレクトロスプレー質量スペクトルの測定結果を示す。なお、図4(a)には、反応開始(0秒)におけるエレクトロスプレー質量スペクトル、図4(b)には、反応開始から7秒後におけるエレクトロスプレー質量スペクトル、図4(c)には、反応開始から12分後におけるエレクトロスプレー質量スペクトルを示す。また、図4(a)～(c)それぞれの反応時間において得られる最大のスペクトルについて、そのイオン強度を時間に対してプロットしたスペクトル分析図も示す。図5には、可視-紫外吸収スペクトルの測定結果を示す。図5(a)には、測定開始(0秒)(図中(A))および7秒後(図中(B))における可視-紫外吸収スペクトル、図5(b)には反応開始7秒後(図中(B))および12分後(図中(C))における可視-紫外吸収スペクトルを示す。

【0092】

その結果、鉄(III)錯体(分子量677)は、反応開始後直ち(7秒以内)に質量数929の中間体に変換され、反応開始後約12分後には化合物(分子量911)に完全に変換されることが分かった。図6は、鉄(III)錯体と、13-HPODおよびEt₃Nとの反応を示した化学反応式である。

【0093】

なお、本実施例に示したような早い、すなわち7秒以内に1段階目の反応が終了するような反応過程を追跡することは、エレクトロスプレー質量スペクトルおよび可視-紫外吸収スペクトルをそれぞれ単独で測定していたのでは、両スペクトル間の微妙な因果関係や時間的関係を容易に解析することは非常に困難である。しかしながら、本発明によればエレクトロスプレー質量スペクトルと可視-紫外吸収スペクトルとを略同時に実時間で測定することができるので、両スペクトル間の微妙な因果関係や時間的関係を容易に解析することができ、反応中間体に関する重要な知見を得ることができた。

【0094】

さらに、本発明は上述した各実施形態に限定されるものではなく、請求項に示した範囲で種々の変更が可能である。

【0095】

例えば、本発明には、被験試料の質量スペクトルと吸収・発光・散乱スペクトルが略同時に実時間で測定できる方法とその装置も含まれる。

【0096】

また、上記質量スペクトルの測定には、エレクトロスプレー質量分析機器を用いること

も本発明に含まれる。

【0097】

また、略同時に実時間で測定できる方法とその装置には、質量スペクトルと吸収スペクトル、質量スペクトルと発光スペクトルといった2つのスペクトルの同時測定だけでなく、質量スペクトルと吸収スペクトルと発光スペクトルといった3つ以上のスペクトルの同時測定方法とその装置をも含めることも本発明に含まれる。

【0098】

また、被験試料の分析方法において、吸収・発光・散乱スペクトルの測定に必要である高い濃度に調整された被験試料のスペクトルを測定すると同時に、高い濃度の試料を導入することができるように改良を加えたイオン化室を装着するエレクトロスプレー質量分析装置に上記被験試料を不活性ガス圧を利用して送り込み、被験試料の質量スペクトルを測定することも本発明に含まれる。

【0099】

また、上述した高い濃度の試料を導入することができるように改良を加えたイオン化室とは、荷電イオンの質量分析部への導入口であるイオン引出電極（オリフィス）の手前に網目状のプラスチック製のイオン導入量制御板を設置されたイオン化室であることも本発明に含まれる。

【0100】

また、上記網目状のプラスチック製のイオン導入量制御板の位置は前後、左右、上下に移動可能であることも本発明に含まれる。

【産業上の利用可能性】

【0101】

本発明の分析装置および分析方法は、蛋白質、核酸などの生体高分子や、刻一刻と変化する化学反応溶液のような被験試料の分析に対して、その利用が大いに期待できるものであり、反応中間体の構造などを容易に分析・把握することが可能となる。

【0102】

従って、本発明の分析装置および分析方法を用いることによって、反応中間体の観測において非常に有用であり、これらから得られた知見を解析することにより、新規医薬品の開発および、化学反応触媒の開発等への利用が期待される。

【図面の簡単な説明】

【0103】

【図1】本発明に係る分析装置の基本構造を示した図である。

【図2】本発明に係る分析装置のイオン化室を拡大した図である。

【図3】本発明に係る実施例における鉄(III)錯体と13-HPODとの化学反応式である。

【図4】(a)は、本発明に係る実施例における鉄(III)錯体と13-HPODとの反応開始時(0秒)の質量スペクトルを示したグラフ図および、質量数677のイオン強度を時間に対してプロットしたスペクトル分析図である。(b)は、本発明に係る実施例における鉄(III)錯体と13-HPODとの反応開始7秒後の質量スペクトルを示したグラフ図および、質量数929のイオン強度を時間に対してプロットしたスペクトル分析図である。(c)は、本発明に係る実施例における鉄(III)錯体と13-HPODとの反応開始12分後の質量スペクトルを示したグラフ図および、質量数911のイオン強度を時間に対してプロットしたスペクトル分析図である。

【図5】(a)は、測定開始(0秒)(図中(A))および7秒後(図中(B))における可視-紫外吸収スペクトルを示すグラフ図である。(b)は、反応開始7秒後(図中(B))および12分後(図中(C))における可視-紫外吸収スペクトルを示すグラフ図である。

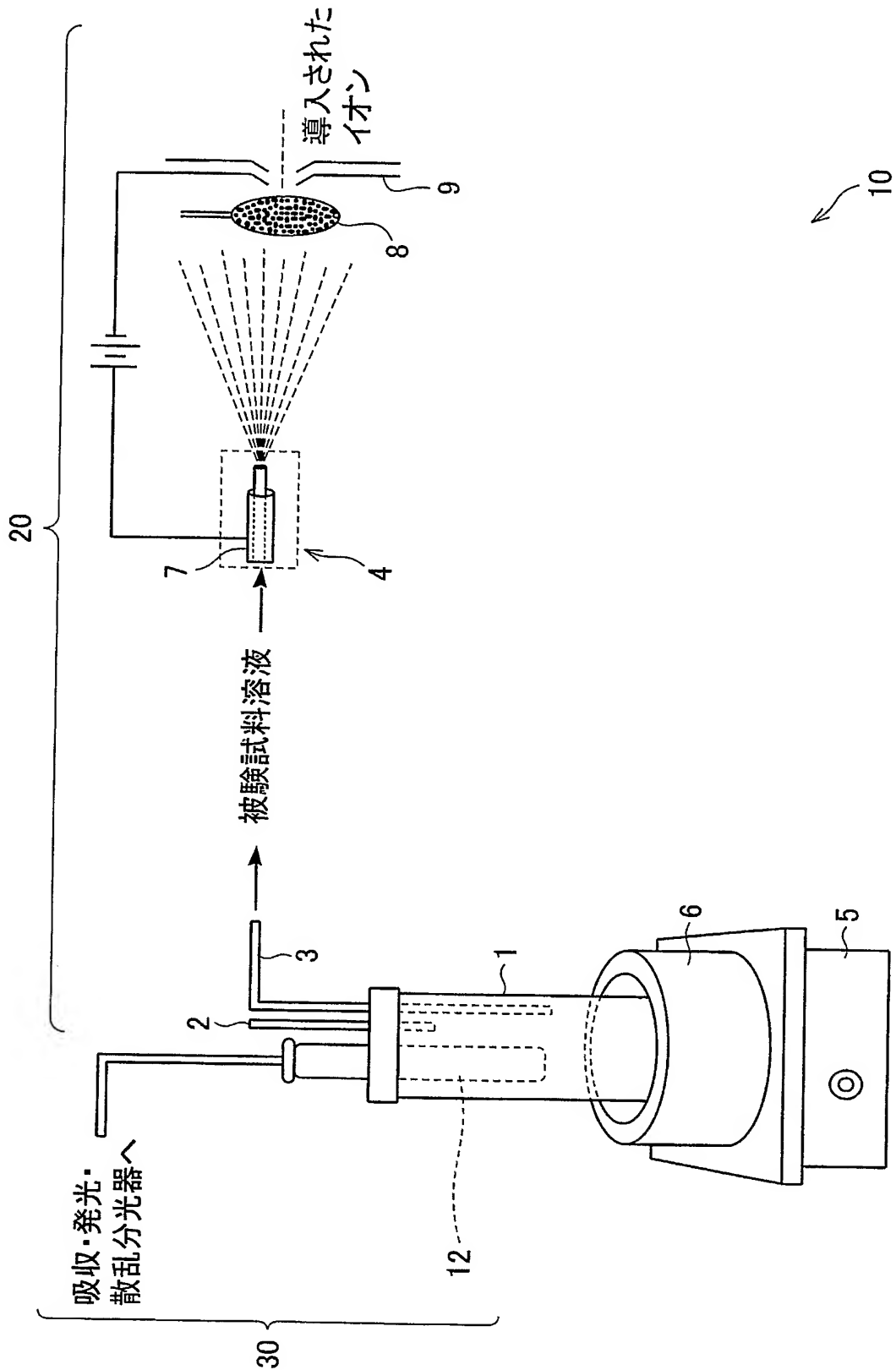
【図6】本発明に係る実施例における鉄(III)錯体と、13-HPODおよびEt₃Nとの反応を示した化学反応式である。

【符号の説明】

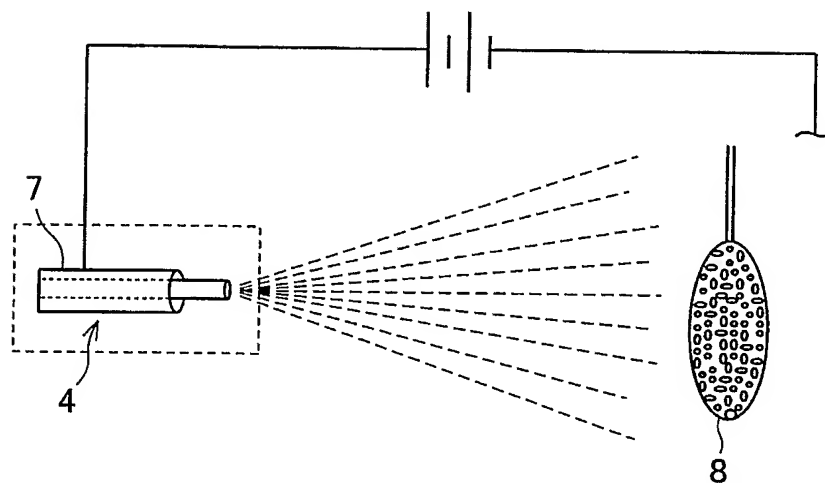
【0104】

- 1 反応容器
- 2 不活性ガス導入管
- 3 キャピラリー
- 4 スプレイヤー
- 5 マグネティックスターラコントローラー
- 6 恒温槽
- 7 シース管
- 8 イオン導入量制御手段
- 9 イオン引出電極
- 10 分析装置
- 12 スペクトル観察用プローブ
- 20 質量スペクトル分析計
- 30 吸収・発光・散乱スペクトル分析計

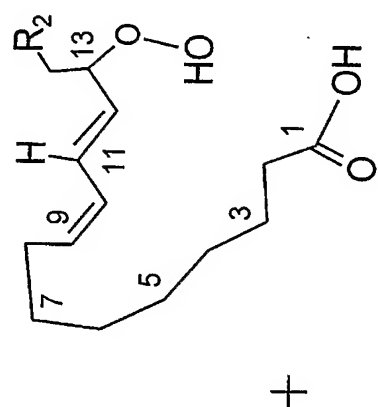
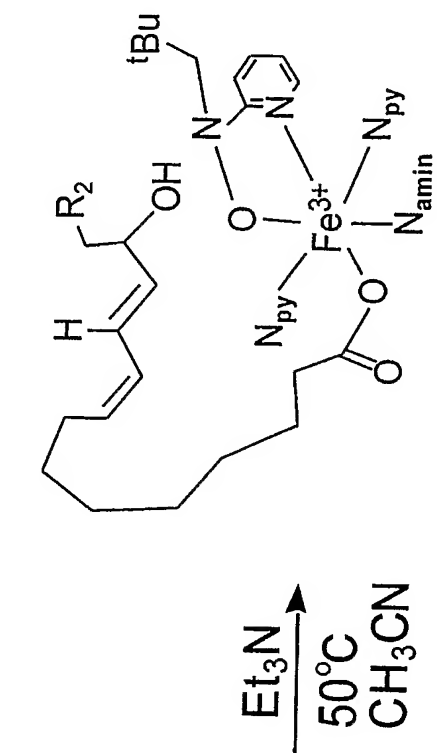
【書類名】 図面
【図 1】



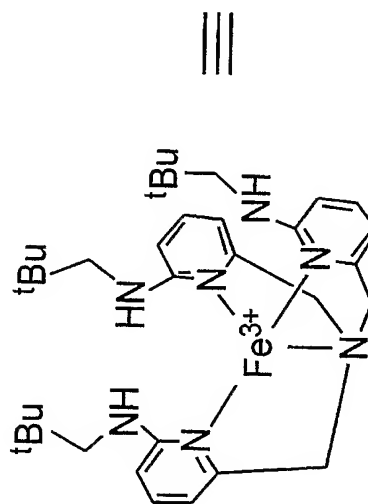
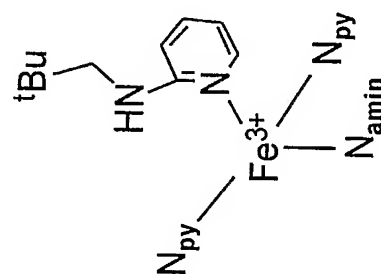
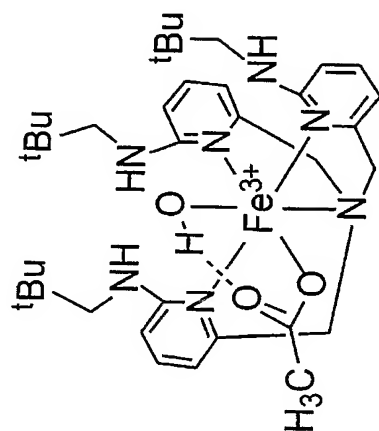
【図 2】



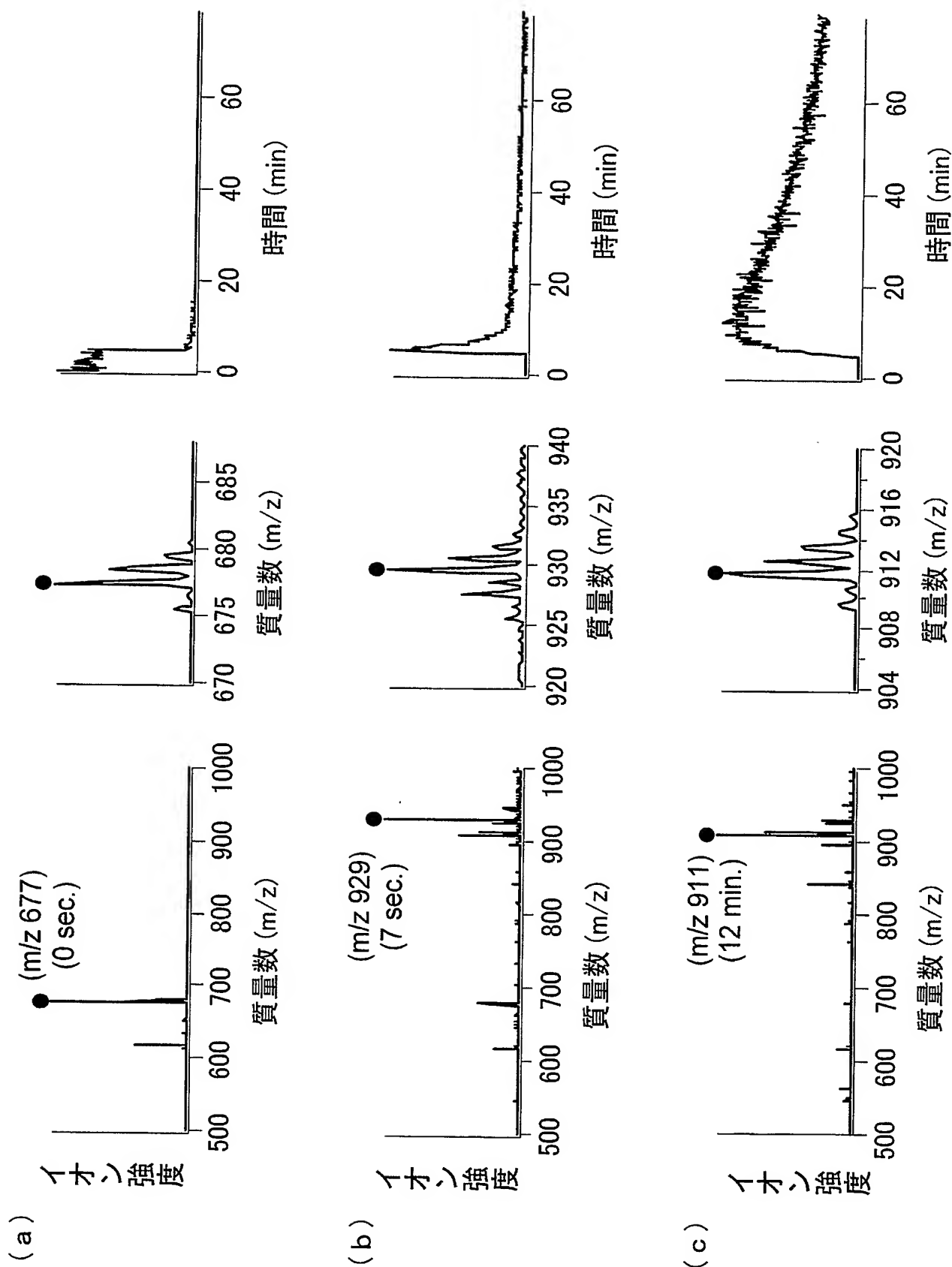
【図 3】



13-HPOD

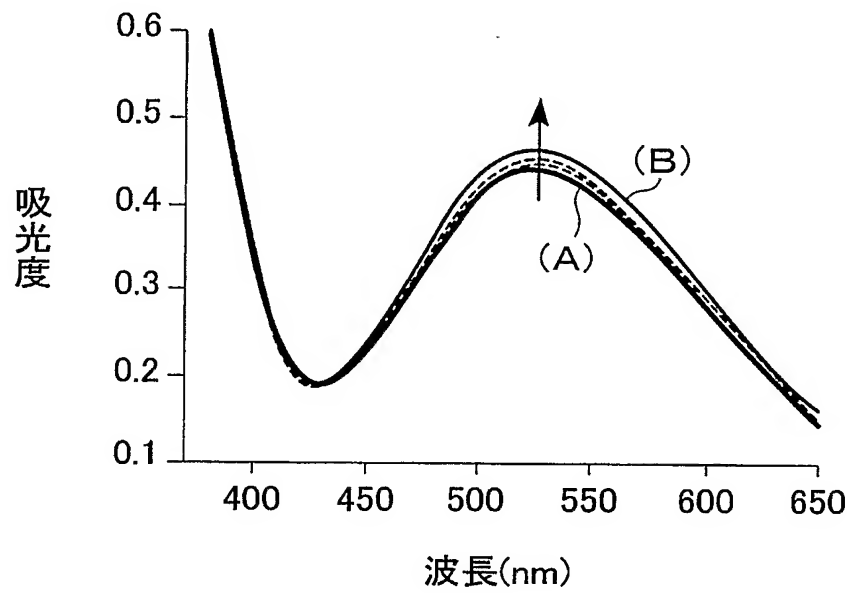


【図 4】

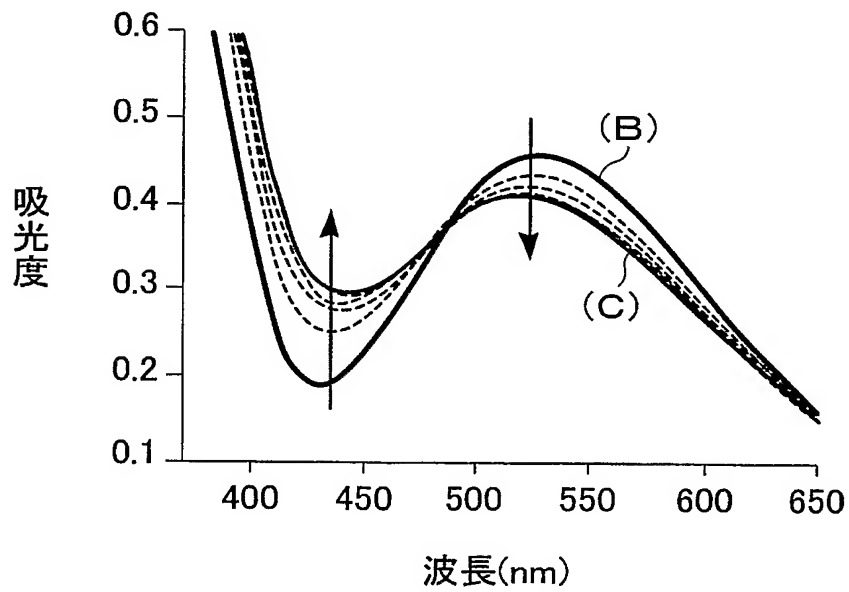


【図 5】

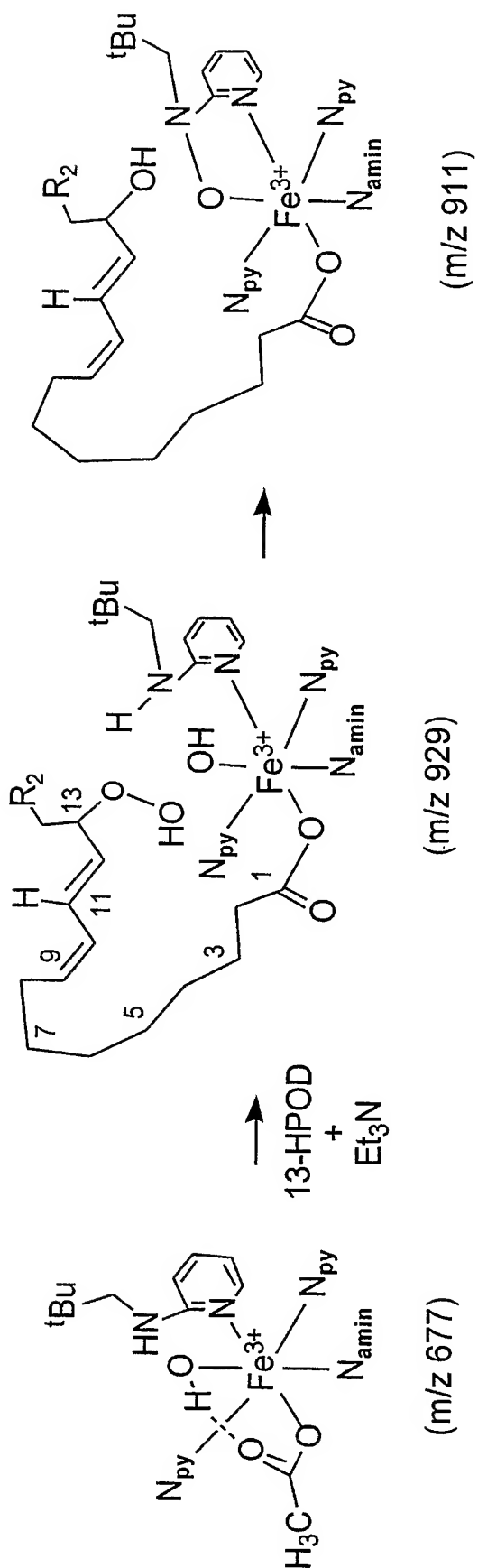
(a)



(b)



【図 6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 質量スペクトルの分析および吸収・発光・散乱スペクトルの分析を略同時に行うことができる分析装置を提供する。

【解決手段】 濃度の高い被験試料をイオン気化した分析装置 1 0 のイオン化室に、イオン導入量制御手段 8 を設け、イオン引出電極 9 に導入する被験試料イオンの量を制御する。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 4 - 0 5 4 1 4 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [5 0 3 3 6 0 1 1 5]

1. 変更年月日 2 0 0 3 年 1 0 月 1 日
[変更理由] 新規登録
住 所 埼玉県川口市本町 4 丁目 1 番 8 号
氏 名 独立行政法人 科学技術振興機構

2. 変更年月日 2 0 0 4 年 4 月 1 日
[変更理由] 名称変更
住 所 埼玉県川口市本町 4 丁目 1 番 8 号
氏 名 独立行政法人科学技術振興機構